

# DIAGRAMA DE FASES DEL VIDRIO DE DIPOLOS

## $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$

**M. Stachiotti, R. Migoni**

*Instituto de Física Rosario, Bv 27 de Febrero 210 Bis  
2000 Rosario, Argentina*

**J. Kohanoff, U. Höchli**

*IBM Research Division, Zürich Research Laboratory  
CH-8803 Rüschlikon, Switzerland*

En el presente trabajo se ha estudiado la naturaleza de la interacción dipolo-dipolo entre dos impurezas de  $\text{Li}^+$  en el cristal mixto  $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$ . Esta interacción es fuertemente modificada por la alta polarizabilidad de la red generando una interacción efectiva muy diferente a la dipolar. El mapeo de estas energías de interacción en un modelo tipo vidrio de spin permite concluir que para  $0 < x < 2.5\%$  la fase estable de baja temperatura del  $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$  es la dipolar vítrea, mientras que para  $2.5\% < x < 10\%$  es la cuadrupolar vítrea.

El cristal mixto  $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$  ha sido investigado en detalle durante los últimos años<sup>1,2</sup>. Está caracterizado por una distribución aleatoria de momentos dipolares asociados a la posición fuera de centro de los iones  $\text{Li}^+$  que ocupan el lugar  $\text{K}^+$ . Debido a la alta polarizabilidad de la red huésped ( $\text{KTaO}_3$ ) la interacción Li-Li se renormaliza generando una interacción efectiva que puede tener carácter dipolar, cuadrupolar o aún más complicado. Debido a problemas de interpretación de las mediciones experimentales, la naturaleza de la fase de baja temperatura permanece todavía en discusión. Existe un acuerdo generalizado en que el sistema condensa en una fase dipolar vítrea (análogo eléctrico del vidrio de spin) cuando la concentración de Li es lo suficientemente baja ( $x < 0.02$ ). Sin embargo, no está claro si a mayor concentración ( $x > 0.02$ ) aparece una fase ordenada (ferroeléctrica o ferroelástica) o si el sistema sigue teniendo una fase de baja temperatura desordenada (dipolar vítrea o cuadrupolar vítrea).

El objetivo del presente trabajo es determinar la interacción efectiva entre dos impurezas de Li en  $\text{KTaO}_3$  utilizando un modelo microscópico. El conocimiento de estas interacciones nos permitirá estudiar el problema estadístico de muchas impurezas realizando un mapeo sobre un Hamiltoniano tipo vidrio de spin.

En nuestro modelo cada ión está constituido por un núcleo y una capa polarizable. Todas las interacciones son tomadas en aproximación armónica excepto para los iones  $\text{O}^{2-}$  donde se incluye una interacción núcleo - capa de cuarto orden (representando una polarizabilidad no lineal para dicho ión). Utilizando la aproximación de

fonones autoconsistentes, este modelo da una muy buena descripción de la dinámica de la red del  $\text{KTaO}_3$  puro en un amplio rango de temperaturas<sup>3</sup>. Las impurezas de Li fueron simuladas modificando el potencial de interacción  $\text{K}^+-\text{O}^{2-}$  en los sitios del defecto. Una descripción más detallada del modelo se encuentra en Ref. 4. La aplicación de este modelo para el caso de una impureza aislada de Li en  $\text{KTaO}_3$  nos permitió estudiar un conjunto de propiedades en muy buen acuerdo con datos experimentales<sup>4</sup>. Por lo tanto la extensión del modelo al estudio de dos impurezas está ampliamente justificada.

Con el objeto de calcular la energía de interacción efectiva Li-Li, introducimos dos defectos y evaluamos la energía total del sistema en la configuración de equilibrio ( $\Phi_{\text{Li-Li}}^{\text{ef}}$ ). Luego la energía de interacción será:

$$V_{\text{Li-Li}}^{\text{ef}} = \Phi_{\text{Li-Li}}^{\text{ef}} - 2\Phi_{\text{Li}}^{\text{ef}} \quad (1)$$

donde  $\Phi_{\text{Li}}^{\text{ef}}$  es la energía total de un Li aislado.

En la Fig. 1 mostramos el comportamiento de  $V_{\text{Li-Li}}^{\text{ef}}$  en función de la distancia Li-Li para diferentes orientaciones relativas de los dos dipolos. El primer hecho no trivial es que la configuración  $\uparrow\uparrow$  tiene menor energía que la  $\uparrow\downarrow$ , en forma opuesta a lo esperado en una interacción dipolar eléctrica. También se observa que la configuración paralela  $\uparrow\uparrow$  se aproxima a la antiparalela  $\uparrow\downarrow$  a cortas distancias y ambas quedan debajo de las tres configuraciones perpendiculares.

Por otro lado, la configuración  $\rightarrow\rightarrow$  tiene una energía de interacción mayor y crece fuertemente cuando la distancia disminuye. La correspondiente configuración antiparalela  $\rightarrow\leftarrow$  tiene, por el contrario, una energía que disminuye cuando las impurezas se acercan.

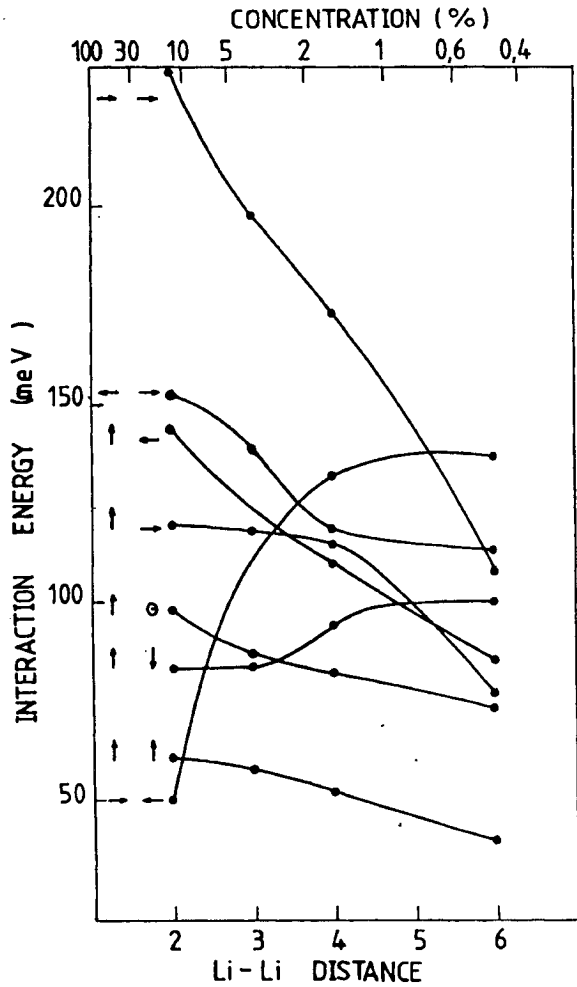


Figura 1: Interacción efectiva Li-Li en función de la distancia para dos iones ubicados a lo largo de la dirección [100] del cristal. Las orientaciones relativas de los momentos dipolares de los Li están representadas por flechas ubicadas a la izquierda de cada curva.

El conjunto de interacciones calculadas previamente junto a la ocupación aleatoria de las impurezas en el material conducen a configuraciones con frustración. La frustración proviene de la competición entre interacciones en forma tal que no pueden ser todas satisfechas por ninguna configuración. En la Fig. 2 mostramos dos plaquetas frustradas donde no hay forma de elegir la orientación de los dipolos sin frustrar al menos una ligadura. Este efecto origina un estado fundamental altamente degenerado y por lo tanto

una fase vítrea de baja temperatura. La naturaleza de esta fase puede ser estudiada describiendo el sistema con un modelo tipo vidrio de spin. con este objetivo, realizamos un mapeo de las energías de interacción calculadas previamente en un Hamiltoniano tipo vidrio de spin propuesto recientemente para el sistema<sup>5</sup>  $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$ .

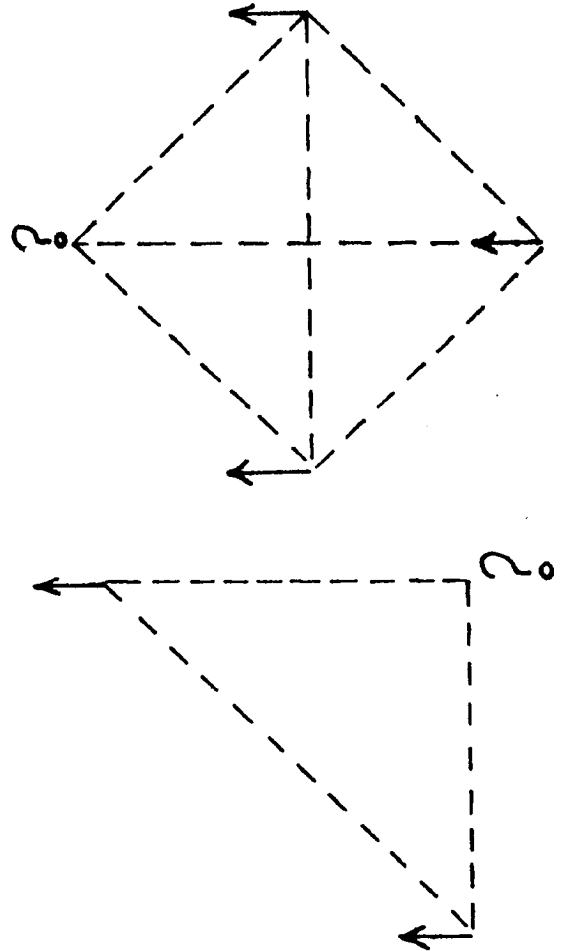


Fig. 2: Dos plaquetas frustradas para el sistema  $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$ . No existe una forma satisfactoria de elegir la orientación de los dipolos sin frustrar al menos una ligadura.

Para cada concentración de Li ( $x$ ), el Hamiltoniano posee tres tipos de constantes de acoplamiento aleatorias:  $J_{\uparrow\uparrow}(x)$ ,  $J_{\uparrow\downarrow}(x)$  y  $J_{\perp}(x)$  correspondientes a configuraciones paralelas, antiparalelas y perpendiculares. Por lo tanto el Hamiltoniano es:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} \sum_{\mu,\nu} J^{\mu\nu}(x) n_i^{\mu} n_j^{\nu} \quad (2)$$

donde  $\mu$  y  $\nu$  denotan las 6 posibles orientaciones espaciales del momento dipolar del Li.  $n_i^{\mu} = 1$  si el defecto en el sitio  $i$  tiene estado orientacional  $\mu$ , y

es cero en caso contrario. Realizando unas simples transformaciones, el Hamiltoniano (2) puede ser escrito en términos de variables de Potts  $s_i^\mu = 6n_i^\mu - 1$ :

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} \sum_{\mu,\nu} W^{\mu\nu}(x) s_i^\mu s_j^\nu \quad (3)$$

con

$$W = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 & b & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 & 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & a & 0 & 0 & b \\ b & 0 & 0 & a & 0 & 0 \\ 0 & b & 0 & 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b & 0 & 0 & a \end{pmatrix}$$

donde  $a = \frac{1}{36}(J_{\uparrow\uparrow} - J_{\perp})$  y  $b = \frac{1}{36}(J_{\uparrow\downarrow} - J_{\perp})$ .

Las componentes dipolar y cuadrupolar de las interacciones pueden ser identificadas con  $J^d = a - b$  y  $J^q = a + b$  respectivamente, ya que  $J^d = 0 (a = b)$  implica que el sistema no puede distinguir entre alineamientos paralelos y antiparalelos. El diagrama de fase de este modelo ha sido estudiado en función de los valores medios  $J_0^d$  y  $J_0^q$  varianzas  $\Delta J^d$  and  $\Delta J^q$  de estas magnitudes<sup>5</sup>. Nosotros hemos evaluado estas cuatro magnitudes promediando las interacciones efectivas sobre una cuasi-esfera de radio  $d = x^{-1/3}$  (hemos asociado una concentración  $x$  con una distancia media entre impurezas  $d$  a través de la relación  $x = 1/d^3$ ). Los resultados son mostrados en la Fig. 3. A bajas concentraciones, la interacción dipolar es más fuerte que la cuadrupolar y ambas están frustradas (las varianzas son mayores que los valores medios). Cuando  $x$  aumenta, la componente cuadrupolar  $J_0^q$  aumenta más rápidamente que la dipolar  $J_0^d$  y domina para concentraciones mayores al 2.5%. sin embargo, ambas interacciones permanecen frustradas lo que implica que la fase de baja temperatura es vítrea. Dicha fase vítrea tiene

carácter predominantemente dipolar para concentraciones menores al 2.5% y cuadrupolar a mayores concentraciones. Una extrapolación gráfica de las curvas de la Fig.3 muestran que  $J_0^q$  supera a  $\Delta J^q$  a muy altas concentraciones ( $x > 10\%$ ) indicando la posibilidad de la aparición de una fase ordenada. Sin embargo, debemos remarcar que el análisis realizado en términos de interacciones de dos cuerpos deja de ser válido en este rango de concentraciones.

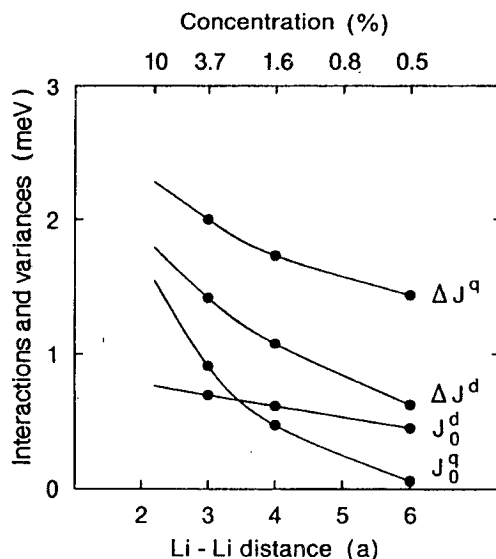


Figura 3: Valores medios ( $J_0$ ) y varianzas ( $\Delta J$ ) de las componentes dipolar ( $d$ ) y cuadrupolar ( $q$ ) en función de la concentración de Li.

## REFERENCIAS

- 1- U. Höchli, K. Knorr and A. Loidl, Adv. Phys. **22**, 405 (1990).
- 2- B. Vugmeister and M. Glinchuk, Rev. Mod. Phys. **62**, 993 (1990).
- 3- C. Perry, R. Currat, H. Buhay, R. Migoni, W. Stirling and J. Axe, Phys. Rev. B **39**, 8666 (1989).
- 4- M. Stachiotti and R. Migoni, J. Phys.: Condens. Matter **2**, 4341 (1990); M. Stachiotti, R. Migoni and U. Hühli, J. Phys.: Condens. Matter **3**, 3689 (1991).
- 5- H. Vollmayr, R. Kree and A. Zippelius, Phys. Rev. B **44**, 12238 (1991).